DERWENT-ACC-NO: 1999-116642

DERWENT-WEEK: 199913

COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Organic electroluminescent device - containing

benzo[1,2-k:4,5-k']di:fluor anthene derivatives

PATENT-ASSIGNEE: MITSUI PETROCHEM IND CO LTD[MITC]

PRIORITY-DATA: 1997JP-0149084 (June 6, 1997)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO PUB-DATE LANGUAGE

PAGES MAIN-IPC

JP 10340783 A December 22, 1998 N/A

014 H05B 033/14

APPLICATION-DATA:

PUB-NO APPL-DESCRIPTOR APPL-NO

APPL-DATE

JP10340783A N/A 1997JP-0149084

June 6, 1997

INT-CL (IPC): C09K011/06; H05B033/14

ABSTRACTED-PUB-NO: JP10340783A

BASIC-ABSTRACT: The organic electroluminescent (EL) device comprises at least

one layer containing at least one kind of benzo[1,2-k:4,5'] difluoranthene

derivatives, which is sandwiched between a pair of electrodes.

The benzo[1,2-k:4,5-k']difluoranthene derivatives are preferably of formula

(I). X1 - X16 = H, halogen, alkyl (straight, branched or cyclic), alkoxyl

(straight, branched or cyclic), or optionally substituted aryl.

USE - As an electroluminescent device.

ADVANTAGE - The organic electroluminescent device has improved brightness.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/8

```
TITLE-TERMS:
ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE CONTAIN BENZO DI
FLUORANTHENE DERIVATIVE
DERWENT-CLASS:
                E14 L03 X26
CPI-CODES: E24-A03; L03-C04;
EPI-CODES: X26-J;
CHEMICAL-CODES:
Chemical Indexing M3 *01*
    Fragmentation Code
    F010 F012 F013 F014 F019 F020 F029 F111 F199 F211
    F299 F431 F499 G000 G001 G002 G010 G011 G012 G013
    G019 G020 G021 G022 G023 G029 G030 G039 G040 G050
    G111 G112 G113 G221 G299 G480 G553 G563 H541 H542
    H543 H601 H602 H603 H604 H607 H608 H609 H641 H642
    H643 M112 M114 M115 M119 M125 M129 M141 M149 M210
    M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223
    M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281
    M282 M283 M320 M413 M414 M510 M520 M521 M522 M523
    M531 M532 M533 M540 M541 M542 M543 M610 M781 M782
    M903 M904 O454 O613
    Ring Index
    07557
    Markush Compounds
    199910-CUC01-K 199910-CUC01-M 199910-CUC01-U
Chemical Indexing M4 *01*
    Fragmentation Code
    F010 F012 F013 F014 F019 F020 F029 F111 F199 F211
    F299 F431 F499 G000 G001 G002 G010 G011 G012 G013
    G019 G020 G021 G022 G023 G029 G030 G039 G040 G050
    G111 G112 G113 G221 G299 G480 G553 G563 H541 H542
    H543 H601 H602 H603 H604 H607 H608 H609 H641 H642
    H643 M112 M114 M115 M119 M125 M129 M141 M149 M210
    M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223
    M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281
    M282 M283 M320 M413 M414 M510 M520 M521 M522 M523
    M531 M532 M533 M540 M541 M542 M543 M610 M781 M782
    M903 M904 Q454 Q613 W003 W030 W334
    Ring Index
    07557
    Markush Compounds
    199910-CUC01-K 199910-CUC01-M 199910-CUC01-U
```

# SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C1999-034224

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N1999-086231

(19)日本国特許庁(JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-340783

(43)公開日 平成10年(1998)12月22日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

FΙ

H05B 33/14 C09K 11/06 H05B 33/14 C09K 11/06

7.

審査請求 未請求 請求項の数6 OL (全 14 頁)

(21)出願番号

特願平9-149084

(71)出願人 000005887

三井化学株式会社

(22)出願日

平成9年(1997)6月6日

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72)発明者 中塚 正勝

神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井

東圧化学株式会社内

(72)発明者 北本 典子

神奈川県横浜市染区笠間町1190番地 三井

東圧化学株式会社内

# (54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

# (57)【要約】

【解決手段】 一対の電極間に、ベンゾ[1,2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体を少なくとも1種含有する層を 少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【効果】 発光輝度が優れた有機電界発光素子を提供する。

# 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一対の電極間に、ベンゾ〔1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【請求項2】 ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体を含有する層が、発光層である請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体を含有する層が、さらに発光性有機金属錯体を含有していることを特徴とする請求項1または2記載の 10有機電界発光素子。

\*【請求項4】 一対の電極間に、さらに、正孔注入輸送 層を有する請求項1~3のいずれかに記載の有機電界発 ※素子

【請求項5】 一対の電極間に、さらに、電子注入輸送 層を有する請求項1~4のいずれかに記載の有機電界発 光素子

【請求項6】 ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体が一般式(1)(化1)で表される化合物である請求項1~5のいずれかに記載の有機電界発光素子。 【化1】

$$X_{11} \xrightarrow{X_{14}} X_{11} \xrightarrow{X_{11}} X_{11} \xrightarrow{X_{11}} X_{11} \xrightarrow{X_{1}} X_{2} \xrightarrow{X_{2}} X_{2} \xrightarrow{X_{11}} X_{2} \xrightarrow{X_{12}} X_{2} \xrightarrow{X_{13}} X_{2} \xrightarrow{X_{14}} X_{2} \xrightarrow{X_{15}} X_{2} \xrightarrow{X_$$

(式中、X1 ~X18は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、 分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状の アルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基 20 を表す)

# 【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、有機電界発光素子 に関する。

### [0002]

【従来の技術】従来、無機電界発光素子は、例えば、バ ックライトなどのパネル型光源として使用されてきた が、該発光素子を駆動させるには、交流の高電圧が必要 である。最近になり、発光材料に有機材料を用いた有機 30 電界発光素子(有機エレクトロルミネッセンス素子:有 機E L素子) が開発された [Appl. Phys. Lett., 51、 913 (1987) 〕。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物 を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持された構造を有し、 該薄膜に電子および正孔 (ホール)を注入して、再結合 させることにより励起子 (エキシトン)を生成させ、こ の励起子が失活する際に放出される光を利用して発光す る素子である。有機電界発光素子は、数V~数十V程度 の直流の低電圧で、発光が可能であり、また蛍光性有機 化合物の種類を選択することにより、種々の色(例え ば、赤色、青色、緑色) の発光が可能である。このよう な特徴を有する有機電界発光素子は、種々の発光素子、 表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、 一般に、発光輝度が低く、実用上充分ではない。

【 0 0 0 3 】 発光輝度を向上させる方法として、発光層として、例えば、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムをホスト化合物、クマリン誘導体、ピラン誘導体をゲスト化合物 (ドーパント) として用いた有機電界発光素子が提案されている [J.Appl. Phys., 65、3610 (1989) 〕。また、発光層として、例えば、ビス (2- ※50

※メチルー8ーキノリノラート)(4ーフェニルフェノラート)アルミニウムをホスト化合物、アクリドン誘導体(例えば、Nーメチルー2ーメトキシアクリドン)をゲスト化合物として用いた有機電界発光素子が提案されている(特開平8-67873号公報)。しかしながら、これらの発光素子も充分な発光輝度を有しているとは言い難い。現在では、一層高輝度に発光する有機電界発光素子が望まれている。

#### [0004]

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、発光 効率に優れ、高輝度に発光する有機電界発光素子を提供 することである。

#### 0 [0005]

【課題を解決するための手段】本発明者等は、有機電界 発光素子に関して鋭意検討した結果、本発明を完成する に至った。すなわち、本発明は、

**①**一対の電極間に、ベンゾ〔1, 2-k:4,5-k'〕ジフルオランテン誘導体を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

**②**ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体を含有する層が、発光層である**①**記載の有機電界発光素子、

③ベンゾ(1, 2-k:4,5-k') ジフルオランテン誘導体を含 有する層が、さらに発光性有機金属錯体を含有している 前記のまたは②記載の有機電界発光素子、

④一対の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する前記記○○③のいずれかに記載の有機電界発光素子、

⑤一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する前記の~④のいずれかに記載の有機電界発光素子、

⑥ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体が一般式(1)(化2)で表される化合物である前記○○⑤のいずれかに記載の有機電界発光素子、に関するものである。

[0006]

(式中、X1~X18は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、 分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状の を表す)

# [0007]

【化2】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明 する。本発明の有機電界発光素子は、一対の電極間に、 ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン誘導体を少な くとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなるも のである。本発明に係るベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフル オランテン誘導体(以下、本発明に係る化合物Aと略基 する)は、好ましくは、前記一般式(1)で表される化 合物である。

【0008】一般式(1)で表される化合物において、  $X_1 \sim X_{18}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐また は環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキ シ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す。 なお、アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル 基などの炭素環式芳香族基、例えば、フリル基、チエニ ル基、ピリジル基などの複素環式芳香族基を表す。好ま しくは、 $X_1 \sim X_{18}$ は、水素原子; ハロゲン原子(例え ば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子);炭素数1~1 6の直鎖、分岐または環状のアルキル基(例えば、メチ ル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n ーブチル基、イソブチル基、sec ーブチル基、tertーブ チル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチ ル基、tert-ペンチル基、シクロペンチル基、n-ヘキ シル基、3,3-ジメチルブチル基、シクロヘキシル 基、n-ヘプチル基、シクロヘキシルメチル基、n-オ クチル基、tert-オクチル基、2-エチルヘキシル基、 n-ノニル基、n-デシル基、n-ドデシル基、n-テ トラデシル基、n-ヘキサデシル基など);炭素数1~ 16の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基(例えば、 メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロ ポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、sec ーブ トキシ基、nーペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ 基、シクロペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、 3,3-ジメチルブチルオキシ基、シクロヘキシルオキ シ基、n-ヘプチルオキシ基、n-オクチルオキシ基、 2-エチルヘキシルオキシ基、n-ノニルオキシ基、n ーデシルオキシ基、n-ドデシルオキシ基、n-テトラ デシルオキシ基、n-ヘキサデシルオキシ基など)、あ るいは炭素数4~16の置換または未置換のアリール基\*50 好ましくは、水素原子、炭素数1~6のアルキル基また

\* (例えば、フェニル基;

【0009】2-メチルフェニル基、3-メチルフェニ アルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基 10 ル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、 4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニ ル基、4-n-ブチルフェニル基、4-tert-ブチルフ ェニル基、4-イソペンチルフェニル基、4-tert-ペ ンチルフェニル基、4-n-ヘキシルフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、4-n-オクチルフェニル 基、4-n-デシルフェニル基、2,3-ジメチルフェ ニル基、2,4ージメチルフェニル基、2,5ージメチ ルフェニル基、3,4-ジメチルフェニル基、5-イン ダニル基、1,2,3,4ーテトラヒドロー5ーナフチ 20 ル基、1, 2, 3, 4ーテトラヒドロー6ーナフチル 基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル 基、4-メトキシフェニル基、3-エトキシフェニル 基、4-エトキシフェニル基、4-n-プロポキシフェ ニル基、4-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブト キシフェニル基、4-n-ペンチルオキシフェニル基、 4-n-ヘキシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシ ルオキシフェニル基、4-n-ヘプチルオキシフェニル 基、4-n-オクチルオキシフェニル基、4-n-デシ ルオキシフェニル基、2,3-ジメトキシフェニル基、 2,5-ジメトキシフェニル基、3,4-ジメトキシフ ェニル基、2-メトキシ-5-メチルフェニル基、3-メチルー4ーメトキシフェニル基、2-フルオロフェニ ル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル 基、2-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、4 -クロロフェニル基、4-ブロモフェニル基、4-トリ フルオロメチルフェニル基、3,4-ジクロロフェニル 基、2-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロー 4-メチルフェニル基、3-クロロ-4-メチルフェニ ル基、2-クロロー4-メトキシフェニル基、4-フェ ニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、4-(4) -メチルフェニル) フェニル基、4-(4'-メトキシ フェニル)フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル 基、4-エトキシー1-ナフチル基、6-メトキシー2 ーナフチル基、7ーエトキシー2ーナフチル基、2ーフ リル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-ピリジ ル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基など)であり、 より好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭 素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキ シ基または炭素数6~10のアリール基であり、さらに

-

は炭素数6~10の炭素環式芳香族基である。 【0010】本発明に係る化合物Aとしては、一般式 (1)において、 $X_1$ ~ $X_{18}$ が水素原子である化合物、  $X_8$  および $X_{17}$ が炭素数1~6のアルキル基または炭素 数6~10のアリール基であり、その他が水素原子である化合物、 $X_7$ 、 $X_9$ 、 $X_{16}$ および $X_{18}$ が炭素数1~6\* \*のアルキル基または炭素数6~10のアリール基であり、その他が水素原子である化合物は特に好ましい。 【0011】本発明に係る化合物Aの具体例としては、 例えば、以下の化合物を挙げることができるが、本発明 はこれらに限定されるものではない。

# · 例示化合物

#### 番号

- 1. ベンゾ〔1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 2. 3-エチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 3. 8-メチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 4. 8-n-オクチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン

(4)

- 5. 3-メトキシベンゾ(1, 2-k:4,5-k') ジフルオランテン
- 6. 3-クロロベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 7. 8, 17-ジメチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 8. 3, 12-ジエチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 9. 8, 17-ジエチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 10. 8, 17-ジ-n-プロピルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン

# [0012]

20

- 11. .8, 17-ジ-n-ブチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 1 2. 8, 1 7 ジーtert ブチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテ
- 13. 8, 17-ジーネオペンチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 14. 8, 17-ジ-n-ヘキシルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 15. 8, 17-ジ-n-オクチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 16. 8, 17-ジ-n-ドデシルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 17. 7, 9, 16, 18-テトラエチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオ ランテン
- 18. 7, 9, 16, 18-テトラーn-ブチルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 19. 7, 9, 16, 18-テトラーn-ヘキシルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 20. 3, 13, -ジェトキシベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 21. 8, 17-ジメトキシベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 22. 8, 17-ジ-n-ブトキシベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 23. 8, 17-ジ-n-ヘキシルオキシベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオ ランテン
- 24. 3, 12-ジクロロベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 25. 8, 17-ジフルオロベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン

# [0013]

- 26. 8-n-ブチル-17-フェニルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオラ ンテン
- 27. 8, 17-ジフェニルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 28. 8, 17-ジ(4'-メチルフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフ

ルオランテン

8

- 29. 8, 17-ジ(4'-エチルフェニル)ベンゾ(1, 2-k:4,5-k') ジフルオランテン
- 30. 8, 17-ジ(4'-tert-ブチルフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 31. 8, 17-ジ(4'-n-オクチルフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 32. 8, 17-ジ(4'-メトキシフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジ フルオランテン
- 33. 8, 17-ジ(4'-n-ブトキシフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 34. 8, 17-ジ(4'-n-ヘキシルオキシフェニル) ベンゾ(1, 2-k: 4,5-k') ジフルオランテン
- 35. 8, 17-ジ(4'-n-デシルオキシフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4, 5-k'] ジフルオランテン
- 36. 8, 17-ジ(4'-フルオロフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジ フルオランテン
- 37. 8, 17-ジ(3'-フルオロフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジ フルオランテン
- 38. 8, 17-ジ(4'-クロロフェニル)ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 39. 8, 17-ジ(2'-ナフチル)ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン

# [0014]

- 40. 8-フェニル-17-(3'-メチルフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 41. 8-フェニル-17-(3'-エトキシフェニル)ベンゾ[1, 2-k:4, 5-k'] ジフルオランテン
- 42. 7, 9, 16, 18-テトラフェニルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフル オランテン
- 43. 7, 9, 16, 18-テトラ (4'-イソプロピルフェニル) ベンゾ [1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 44. 7, 9, 16, 18-テトラ (3'-クロロフェニル) ベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 45. 7, 9, 16, 18-テトラエチル-8, 17-ジフェニルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン
- 46. 7, 8, 9, 16, 17, 18-ヘキサフェニルベンゾ[1, 2-k:4,5-k'] ジフルオランテン

【0015】本発明に係る化合物Aは、其自体公知の方法に従って製造することができる。例えば、Chem. Ber., 126、2543 (1993), Tetrahedron、20、1559 (1964)に記載の方法に従って製造することができる。すなわち、例えば、アセナフチレン誘導体とベンゾ[1, 2-c:4,5-c'] ジフラン誘導体の等価体を反応後、生成物を脱水することにより製造することができる。さらには、シクロペンタ[a] アセナフチレン-2-オン誘導体と1,4-ベンザジイン誘導体の等価体を反応させることにより製造することができる〔例えば、Synlett、75 (1994)に記載の製造方法を参考〕。

【0016】有機電界発光素子は、通常、一対の電極間\*50 層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子

\*に、少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少な 40 くとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する 化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子 輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入 輸送成分を含有する正孔注入輸送層または/および電子 注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることも できる。例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機 能、正孔輸送機能または/および電子注入機能、電子輸 送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層また は/および電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とす ることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸送

(一層型の素子)の構成とすることもできる。また、正 孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれ の層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、 正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層 において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を 別々に設けて構成することもできる。

【 O O 1 7 】本発明の有機電界発光素子において、本発明に係る化合物Aは、正孔注入輸送成分、発光成分または電子注入輸送成分に用いることが好ましく、正孔注入輸送成分または発光成分に用いることがおり好ましく、発光成分に用いることが特に好ましい。本発明の有機電界発光素子においては、本発明に係る化合物Aは、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0018】本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(B)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(C)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(D)陽極/発光層/陰極型素子(図4)などを挙げることができる。さらには、発光 20層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である(E)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図5)とすることもできる。

(D)型の素子構成としては、発光成分を一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子は勿論であるが、さらには、例えば、(F)正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(G)正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(図7)、または(H)発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(図8)がある。

【0019】本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数層設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層または/および発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。より好ましい有機電界発光素子の構成は、(A)型素子、(B)型素子、(C)型素子、(E)型素子、(G)型素子または(H)型素子である。

【0020】本発明の有機電界発光素子としては、例えば、(図1)に示す(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子について説明する。

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入 輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、 7は電源を示す。

【0021】本発明の有機電界発光素子は、基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート(例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルフォン、ポリメチルメタアクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート)、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせて、発光色をコントロールすることもできる。

【0022】陽極2としては、比較的仕事関数の大きい 金属、合金または電気電導性化合物を電極物質として使 用することが好ましい。陽極に使用する電極物質として は、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、 パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化錫、酸化 亜鉛、ITO(インジウム・ティン・オキサイド)、ポ リチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができ る。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、ある いは複数併用してもよい。陽極は、これらの電極物質 を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法によ り、基板の上に形成することができる。また、陽極は一 層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよ い。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百Ω/□ 以下、より好ましくは、5~50Ω/□程度に設定す る。陽極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよる が、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、 10~500nm程度に設定する。

【0023】正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔(ホール)の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。正孔注入輸送層は、本発明に係る化合物Aおよび/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物(例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールメタン誘導体、トリアリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、ボリンニンンビニレンおよびその誘導体、ボリチオフェンおよびその誘導体、ボリーNービニルカルバゾール誘導体など)を少なくとも1種用いて形成することができる。尚、正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0024】本発明において用いる他の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体(例えば、4,4'ービス[N-フェニルーN-(4"ーメチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'ービス[N-フェニルーN-(3"ーメチルフェニル)アミ
50 ノ]ビフェニル、4,4'ービス[N-フェニルーN-

(3"-メトキシフェニル)アミノ〕ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(1"-ナフチル)ア ミノ)ビフェニル、3,3'ージメチルー4,4'ービ ス [ N-フェニル-N-(3" -メチルフェニル) アミ ノ〕ビフェニル、1,1-ビス〔4'-[N,N-ジ (4"-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロへ キサン、9,10-ビス[N-(4'-メチルフェニ ル) -N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェ ナントレン、3,8-ビス(N,N-ジフェニルアミ ・ノ) -6-フェニルフェナントリジン、4-メチルー N, N-ビス(4", 4"'-ビス(N', N'-ジ(4 ーメチルフェニル) アミノ] ビフェニルー4ーイル] ア ニリン、N, N'ービス (4-(ジフェニルアミノ)フ ェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 3-ジアミノベ ンゼン、N, N'-ビス(4-(ジフェニルアミノ)フ ェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 4-ジアミノベ ンゼン、5,5"ービス[4-(ビス[4-メチルフェ ニル] アミノ) フェニル] -2, 2':5', 2"-タ ーチオフェン、1,3,5-トリス(ジフェニルアミ ノ) ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾ 20 リル)トリフェニルアミン、4,4',4"ートリス [N-(3"'-メチルフェニル)-N-フェニルアミ ノ〕トリフェニルアミン、1,3,5-トリス〔N-(4-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ)ベ ンゼンなど)、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ -N-ビニルカルバゾール誘導体がより好ましい。本発 明に係る化合物Aと他の正孔注入輸送機能を有する化合 物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める本発明に 係る化合物Aの割合は、好ましくは、0.1~40重量 %程度に調製する。

【0025】発光層4は、正孔および電子の注入機能、 それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を 生成させる機能を有する化合物を含有する層である。発 光層は、本発明に係る化合物Aおよび/または他の発光 機能を有する蛍光性化合物(例えば、アクリドン誘導 体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物〔例えば、 ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレ ン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニ ルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジ エン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-40 ビス (フェニルエチニル) アントラセン、1,4-ビス (9'-エチニルアントラセニル)ベンゼン、4,4' ービス(9"ーエチニルアントラセニル)ビフェニ ル〕、トリアリールアミン誘導体〔例えば、正孔注入輸 送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げるこ とができる〕、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キ ノリノラート) アルミニウム、ビス(10-ベンゾ(h) キノリノラート) ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシ フェニル) ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4- 50 属錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)

ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩〕、スチルベン誘導体 〔例えば、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、4,4'ービス(2,2ージフェニルビニ ル) ビフェニル〕、クマリン誘導体〔例えば、クマリン 1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン 106、クマリン138、クマリン151、クマリン1 52、クマリン153、クマリン307、クマリン31 1、クマリン314、クマリン334、クマリン33 8、クマリン343、クマリン500〕、ピラン誘導体 10 〔例えば、DCM1、DCM2〕、オキサゾン誘導体 〔例えば、ナイルレッド〕、ベンゾチアゾール誘導体、 ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導 体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリー Nービニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフ ェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導 体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレン ビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレン およびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよび その誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導 体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体など)を 少なくとも1種用いて形成することができる。

【0026】本発明の有機電界発光素子においては、発 光層に本発明に係る化合物Aを含有していることが好ま しい。本発明に係る化合物Aと他の発光機能を有する化 合物を併用する場合、発光層中に占める本発明に係る化 合物Aの割合は、好ましくは、0.001~99.99 9重量%程度、より好ましくは、0.01~99.99 重量%程度、さらに好ましくは、0.1~99.9重量 %程度に調製する。

【0027】本発明において用いる他の発光機能を有す 30 る化合物としては、発光性有機金属錯体がより好まし い。例えば、J. Appl. Phys., 65、3610 (1989) 、特開 平5-214332号公報に記載のように、発光層をホ スト化合物とゲスト化合物(ドーパント)とより構成す ることもできる。本発明に係る化合物Aを、ホスト化合 物として用いて発光層を形成することができ、さらに は、ゲスト化合物として用いて発光層を形成することも できる。本発明に係る化合物Aを、ゲスト化合物として 用いて発光層を形成する場合、ホスト化合物としては、 発光性有機金属錯体が好ましい。この場合、発光性有機 金属錯体に対して、本発明に係る化合物Aを、好ましく は、0.001~40重量%程度、より好ましくは、 0.01~30重量%程度、特に好ましくは、0.1~ 10重量%程度使用する。

【0028】本発明に係る化合物Aと併用する発光性有 機金属錯体としては、特に限定されるものではないが、 発光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換または未 置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機ア ルミニウム錯体がより好ましい。好ましい発光性有機金

で表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げることが できる。

$$(Q)_3 - A_1$$
 (a)

(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配 位子を表す)

$$(Q)_2 - A_1 - O - L$$
 (b)

(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O - Lはフェノラート配位子であり、Lはフェニル部分を 含む炭素数6~24の炭化水素基を表す)

$$(Q)_2 - A_1 - O - A_1 - (Q)_2$$
 (c)

(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表す) 【0029】発光性有機金属錯体の具体例としては、例 えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ト リス (4-メチル-8-キノリノラート) アルミニウ ム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミ ニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラー ト) アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キ ノリノラート) アルミニウム、トリス(4,6-ジメチ ルー8-キノリノラート) アルミニウム、ビス(2-メ チル-8-キノリノラート) (フェノラート) アルミニ ウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス(2-メチル -8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)ア ルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート) (4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラ ート) アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノ ラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、 【0030】ビス(2-メチル-8-キノリノラート) (4-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス(2 -メチル-8-キノリノラート)(2,3-ジメチルフ ェノラート) アルミニウム、ピス (2-メチル-8-キ ノリノラート)(2,6-ジメチルフェノラート)アル ミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート) (3, 4-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3,5-ジメチ ルフェノラート) アルミニウム、ビス(2-メチル-8 ーキノリノラート) (3,5-ジーtert-ブチルフェノ ラート) アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリ ノラート)(2,6-ジフェニルフェノラート)アルミ 40 ニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート) (2, 4, 6-トリフェニルフェノラート) アルミニウ ム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 4,6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス ーテトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2 -メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)

アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラー ト) (2-ナフトラート) アルミニウム、ビス(2,4 14

ノラート) アルミニウム、ビス (2,4ージメチルー8 -キノリノラート) (3-フェニルフェノラート) アル ミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラー ト)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス (2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチルー8ーキノリノラート)(3,5ージーtertー ブチルフェノラート) アルミニウム、

【0031】ビス(2-メチル-8-キノリノラート) 10 アルミニウムールーオキソービス(2ーメチルー8ーキ ノリノラート) アルミニウム、ビス(2,4ージメチル -8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソービ ス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニ ウム、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラ ート) アルミニウム-μ-オキソービス (2-メチルー 4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)ア ルミニウム-μ-オキソービス(2-メチル-4-メト キシ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス(2-メチルー5ーシアノー8ーキノリノラート) アルミニウ ムールーオキソービス(2ーメチルー5ーシアノー8ー キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチルー5 -トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニ ウム-μ-オキソービス(2-メチル-5-トリフルオ ロメチルー8-キノリノラート) アルミニウムなどを挙 げることができる。勿論、発光性有機金属錯体は、単独 で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0032】電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注 入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する 機能を有する化合物を含有する層である。電子注入輸送 層は、本発明に係る化合物Aおよび/または他の電子注 入輸送機能を有する化合物(例えば、有機金属錯体〔例 えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビ ス(10-ベンゾ[h] キノリノラート) ベリリウム]、 オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリア ジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキ サリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フ ルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体な ど)を少なくとも1種用いて形成することができる。本 発明に係る化合物Aと他の電子注入輸送機能を有する化 合物を併用する場合、電子注入輸送層中に占める本発明 に係る化合物Aの割合は、好ましくは、O. 1~40重 量%程度に調製する。本発明においては、本発明に係る 化合物Aと有機金属錯体〔例えば、前記一般式(a)~ 一般式(c)で表される化合物〕を併用して、電子注入 輸送層を形成することは好ましい。

【0033】陰極6としては、比較的仕事関数の小さい 金属、合金または電気電導性化合物を電極物質として使 用することが好ましい。陰極に使用する電極物質として ージメチルー8-キノリノラート)(2-フェニルフェ 50 は、例えば、リチウム、リチウムーインジウム合金、ナ

トリウム、ナトリウムーカリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウムー銀合金、マグネシウムーインジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウムーリチウム合金、アルミニウムーマグネシウム合金、グラファイト薄膜等を挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0034】陰極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法等の方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。尚、陰極のシート電気抵抗は、数百Ω/□以下に設定するのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光20光の透過率が70%以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。

【0035】また、本発明の有機電界発光素子において は、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャー が含有されていてもよい。一重項酸素クエンチャーとし ては、特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、 ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げ られ、特に好ましくは、ルブレンである。一重項酸素ク エンチャーが含有されている層としては、特に限定する ものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸 30 送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。 尚、例えば、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャー を含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させ てもよく、正孔注入輸送層と隣接する層(例えば、発光 層、発光機能を有する電子注入輸送層)の近傍に含有さ せてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量として は、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を構成す る全体量の0.01~50重量%、好ましくは、0.0 5~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%

【0036】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法(例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・ブロゼット法など)により薄膜を形成することにより作製することができる。真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、10-5 Torr 程度以下の真空下で、50~400℃程度のボート温度(蒸着源温度) -50~300℃程度のボート温度(蒸着源温度) -50~300℃程度の

16

基板温度で、0.005~50nm/sec 程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を製造することができる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0037】溶液塗布法により、各層を形成する場合、 各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂 等を、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。正 孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用し うるバインダー樹脂としては、例えば、ポリーN-ビニ ルカルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリ エステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、 ポリメチルメタアクリレート、ポリエーテル、ポリカー ボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミ ド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレン オキサイド、ポリエーテルスルフォン、ポリアニリンお よびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポ リフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレ ンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびそ の誘導体等の高分子化合物が挙げられる。バインダー樹 脂は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用しても よい。

【0038】溶液塗布法により、各層を形成する場合、 各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂 等を、適当な有機溶媒(例えば、ヘキサン、オクタン、 デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メ チルナフタレン等の炭化水素系溶媒、例えば、アセト ン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シ クロヘキサノン等のケトン系溶媒、例えば、ジクロロメ タン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエ タン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロ ベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロ ゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチ ル、酢酸アミル等のエステル系溶媒、例えば、メタノー ル、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサ ノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチ ルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶 媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、 ジオキサン、アニソール等のエーテル系溶媒、例えば、 N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセ トアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメ チル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキサイ ド等の極性溶媒)および/または水に溶解、または分散 させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成す ることができる。

のボート温度(蒸着源温度)、-50~300℃程度の 50 【0039】尚、分散する方法としては、特に限定する

ものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペ イントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を 用いて微粒子状に分散することができる。塗布液の濃度 に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布 法により、所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設 定することができ、一般には、0.1~50重量%程 度、好ましくは、1~30重量%程度の溶液濃度であ る。尚、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に 関しては、特に限定するものではないが、一般には、各 層を形成する成分に対して(一層型の素子を形成する場 10 合には、各成分の総量に対して)、5~99.9重量% 程度、好ましくは、10~99重量%程度、より好まし くは、15~90重量%程度に設定する。

【0040】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層 の膜厚に関しては、特に限定するものではないが、一般 に、5nm~5µm程度に設定することが好ましい。 尚、作製した素子に対し、酸素や水分等との接触を防止 する目的で、保護層(封止層)を設けたり、また素子 を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオ イル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカ 20 ーボン油などの不活性物質中に封入して保護することが できる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機 高分子材料(例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シ リコーン樹脂、エポキシシリコーン樹脂、ポリスチレ ン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポ リイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリ エチレン、ポリフェニレンオキサイド)、無機材料(例 えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶 縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化物、 金属硫化物)、さらには光硬化性樹脂などを挙げること ができ、保護層に使用する材料は、単独で使用してもよ く、あるいは複数併用してもよい。保護層は、一層構造 であってもよく、また多層構造であってもよい。

【0041】また、電極に保護膜として、例えば、金属 酸化膜(例えば、酸化アルミニウム膜)、金属フッ化膜 を設けることもできる。また、例えば、陽極の表面に、 例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘 導体、フタロシアニン誘導体から成る界面層(中間層) を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極は その表面を、例えば、酸、アンモニア/過酸化水素、あ 40 るいはプラズマで処理して使用することもできる。

【0042】本発明の有機電界発光素子は、一般に、直 流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型また は交流駆動型の素子としても使用することができる。 尚、印加電圧は、一般に、2~30 V程度である。本発 明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種 の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセン サーなどに使用することができる。

# [0043]

18

明するが、勿論、本発明はこれらに限定されるものでは ない。

#### 実施例1

厚さ200nmのIT〇透明電極(陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダー に固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。 まず、ITO透明電極上に、4,4'ービス〔Nーフェ ニルーN-(3"-メチルフェニル)アミノ)ビフェニ ルを、蒸着速度O. 2 nm/sec で75 nmの厚さに蒸 着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス (2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフ ェノラート)アルミニウムとベンゾ[1,2-k:4,5-k']ジフ ルオランテン (例示化合物番号1の化合物)を、異なる 蒸着源から、蒸着速度0.2nm/sec で50nmの厚 さに共蒸着(重量比100:0.5)し、発光層とし た。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム を、蒸着速度0.2nm/sec で50nmの厚さに蒸着 し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシ ウムと銀を、蒸着速度0.2nm/sec で200nmの 厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電 界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態 を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、 乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、5 5 m A / c m<sup>2</sup> の電流が流れた。輝度 2 3 5 0 c d / m 2 の緑色の発光が確認された。

#### 【0044】実施例2~6

実施例1において、発光層の形成に際して、例示化合物 番号1の化合物を使用する代わりに、例示化合物番号9 の化合物 (実施例2)、例示化合物番号14の化合物 (実施例3)、例示化合物番号17の化合物(実施例 4)、例示化合物番号28の化合物(実施例5)、例示 化合物番号42の化合物(実施例6)を使用した以外 は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作 製した。それぞれの素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直 流電圧を印加したところ、緑色の発光が確認された。さ らにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。 【0045】比較例1

実施例1において、発光層の形成に際して、例示化合物 番号1の化合物を使用せずに、ビス(2-メチル-8-キノリノラート) (4-フェニルフェノラート) アルミ ニウムだけを用いて、50nmの厚さに蒸着し、発光層 とした以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発 光素子を作製した。この素子に、乾燥雰囲気下、12V の直流電圧を印加したところ、青色の発光が確認され た。さらにその特性を調べ、結果を第1表に示した。 【0046】比較例2

実施例1において、発光層の形成に際して、例示化合物 【実施例】以下、実施例により本発明をさらに詳細に説 50 番号1の化合物を使用する代わりに、N-メチル-2-

\*結果を第1表に示した。 [0047] 【表1】

メトキシアクリドンを使用した以外は、実施例1に記載 の方法により有機電界発光素子を作製した。この素子 に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したとこ ろ、青色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、\*

第1表

有機電界	輝度	電流密度
発光素子	(cd/m²)	(mA/cm²)
実施例2	2 3 3 0	5 5
実施例3	2300	5 4
実施例4	2340	5 3
実施例 5	2350	5 6
実施例6	2 3 2 0	5 5
比較例1	1170	8 2
比較例 2	1550	7 4

# 【0048】実施例7

厚さ200mmのIT〇透明電極(陽極)を有するガラ 20 し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダー に固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。 まず、ITO透明電極上に、4,4'ービス〔Nーフェ ニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕 ビフェニ ルを、蒸着速度0.2nm/sec で75nmの厚さに蒸 着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス (2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフ ェノラート)アルミニウムと例示化合物番号7の化合物 を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/sec で5 0 n m の厚さに共蒸着(重量比100:1.0)し、発 光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アル ミニウムを、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚 さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、 マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/sec で20 Onmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極と し、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽 の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発 光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加した ところ、58mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れた。輝度237 Ocd/m²の緑色の発光が確認された。

#### 【0049】実施例8

厚さ200mmのIT〇透明電極(陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダー に固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。 まず、IT〇透明電極に、4,4'ービス〔Nーフェニ ※を、蒸着速度O. 2nm/sec で75nmの厚さに蒸着

20

(2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ ーオキソービス(2-メチル-8-キノリノラート)ア ルミニウムと例示化合物番号36の化合物を、異なる蒸 着源から、蒸着速度O.2nm/sec で50nmの厚さ に共蒸着(重量比100:2.0)し、発光層とした。 次に、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムを、 蒸着速度0.2nm/sec で50nmの厚さに蒸着し、 電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウム と銀を、蒸着速度 0.2 n m/sec で 200 n m の 厚さ に共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発 光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保 ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥 雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、57m A/c m<sup>2</sup> の電流が流れた。輝度2320 c d/m<sup>2</sup> の 緑色の発光が確認された。

# 【0050】実施例9

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダー に固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。 まず、ITO透明電極上に、4,4'ービス〔N-フェ ニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕 ピフェニ ルを、蒸着速度O. 2nm/sec で75nmの厚さに蒸 着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウ ム-μ-オキソービス(2,4-ジメチル-8-キノリ ノラート)アルミニウムと例示化合物番号11の化合物 を、異なる蒸着源から、蒸着速度O.2nm/sec で5 ルーN-(3"-メチルフェニル)アミノ] ビフェニル※50 Onmの厚さに共蒸着(重量比100:4.0)し、発 光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度 $0.2\,\mathrm{nm/sec}$ で $50\,\mathrm{nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 $0.2\,\mathrm{nm/sec}$ で $20\,\mathrm{0nm}$ の厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $12\,\mathrm{Von}$ 直流電圧を印加したところ、 $60\,\mathrm{mA/c\,m^2}$ の電流が流れた。輝度 $213\,\mathrm{0c\,d/m^2}$ の緑色の発光が確認された。

### 【0051】実施例10

厚さ200mmのIT〇透明電極(陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダー に固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。 まず、ITO透明電極上に、4,4'ーピス〔Nーフェ ニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ] ビフェニ ルを、蒸着速度0.2nm/sec で75nmの厚さに蒸 着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリ 20 ス(8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番 号32の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/sec で50nmの厚さに共蒸着(重量比100: 1.0)し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さ らにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2n m/sec で200 n mの厚さに共蒸着(重量比10: 1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、 蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製 した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流 電圧を印加したところ、58mA/cm²の電流が流れ 30 た。輝度1970cd/m²の緑色の発光が確認され た。

# 【0052】実施例11

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダー に固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。 まず、ITO透明電極上に、4,4'ービス〔Nーフェ ニルーN-(3"-メチルフェニル)アミノ〕 ピフェニ ルを、蒸着速度0.2nm/sec で75nmの厚さに蒸 着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、例示 化合物番号1の化合物を、蒸着速度0.2nm/sec で 50nmの厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その 上に、1,3-ビス〔5'-(p-tert-ブチルフェニ ル)-1,3,4-オキサジアゾール-2'-イル)ベ ンゼンを、蒸着速度O. 2 n m/sec で50 n mの厚さ に蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マ グネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、

22

有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減 圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素 子に、乾燥雰囲気下、14Vの直流電圧を印加したとこ ろ、48mA/cm²の電流が流れた。輝度1840c d/m²の緑色の発光が確認された。

#### 【0053】実施例12

厚さ200mmのIT〇透明電極(陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ 10 らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダー に固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。 まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号27の化合 物を、蒸着速度O.2nm/sec で55nmの厚さに蒸 着し、発光層とした。次いで、その上に、1,3-ビス (5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2'-イル]ベンゼンを、蒸着速度 0.2 n m/sec で 7 5 n m の 厚 さ に 蒸着 し、 電子注入 輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、 蒸着速度0.2nm/sec で200nmの厚さに共蒸着 (重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を 作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま 実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気 下、15 Vの直流電圧を印加したところ、68 mA/c m<sup>2</sup> の電流が流れた。輝度1250cd/m<sup>2</sup> の緑色の 発光が確認された。

#### 【0054】実施例13

厚さ200 nmの ITO透明電極 (陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上 に、ポリーNービニルカルバゾール(重量平均分子量1 50000), 1, 1, 4, 4-7, 500003-ブタジエン(青色の発光成分)、例示化合物19の 化合物、およびDCM1("4-(ジシアノメチレン) -2-メチル-6-(4'-ジメチルアミノスチリル) -4H-ピラン"(オレンジ色の発光成分)〕を、それ ぞれ重量比100:5:3:2の割合で含有する3重量 %ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法によ り、400 n mの発光層を形成した。次に、この発光層 を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定 した後、蒸着槽を3×10<sup>-6</sup> Torr に減圧した。さら に、発光層の上に、3-(4'-tert-ブチルフェニ ル) -4-フェニルー-5-(4"-ビフェニル)-1, 2, 4-トリアゾールを、蒸着速度0.2nm/se c で20nmの厚さに蒸着した後、さらにその上に、ト リス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度 0.2nm/sec で30nmの厚さに蒸着し電子注入輸 送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸 着速度0.2nm/sec で200nmの厚さに共蒸着 50 (重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を

作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、74mA/cm²の電流が流れた。輝度1120cd/m²の白色の発光が確認された。

#### 【0055】実施例14

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラ ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超 音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ らにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上 に、ポリーN-ビニルカルバゾール(重量平均分子量1 50000)、1、3-ビス〔5'-(p-tert-ブチ ルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2'-イル〕ベンゼンおよび例示化合物番号13の化合物を、 それぞれ重量比100:30:3の割合で含有する3重 量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法に より、300nmの発光層を形成した。次に、この発光 層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固 定した後、蒸着槽を3×10<sup>-6</sup> Torr に減圧した。さら に、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0. 2 n m/sec で 200 n m の 厚 さ に 共蒸着 (重量比1 0:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。 作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15Vの 直流電圧を印加したところ、76mA/cm2の電流が 流れた。輝度1420cd/m²の緑色の発光が確認さ れた。

# 【0056】比較例3

実施例14において、発光層の形成に際して、例示化合物番号13の化合物の代わりに、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンを使用した以外は、実 30 施例14に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界素子に、乾燥雰囲気下、15 Vの直流電圧を印加したところ、86 mA/c m² の電流が流れた。輝度680 c d/m² の青色の発光が確認された。

#### 【0057】実施例15

厚さ200nmの1TO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリカーボネート(重量平均分子量50000)、4、4'ービス〔NーフェニルーNー(3"ーメチルフェニル)アミノ〕ビフェニル、ビス(2ーメチルー8ーキノリノラート)アルミニウムールーオキソービス(2ーメチルー8ーキノリノラート)アルミニウムおよび例

24

示化合物番号30の化合物を、それぞれ重量比100:40:60:1の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、300nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を3×10-6 Torr に減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、66mA/cm²の電流が流れた。輝度750cd/m²の緑色の発光が確認された。

# [0058]

【発明の効果】本発明により、発光輝度が優れた有機電 界発光素子を提供することが可能になった。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】有機電界発光素子の一例(A)の概略構造図である。

【図2】有機電界発光素子の一例(B)の概略構造図で 3 ある。

【図3】有機電界発光素子の一例(C)の概略構造図である.

【図4】有機電界発光素子の一例(D)の概略構造図である.

【図5】有機電界発光素子の一例(E)の概略構造図で \*\*\*

【図6】有機電界発光素子の一例(F)の概略構造図である。

【図7】有機電界発光素子の一例(G)の概略構造図で ある

【図8】有機電界発光素子の一例(H)の概略構造図である。

# 【符号の説明】

1:基板

2:陽極

3:正孔注入輸送層

3a:正孔注入輸送成分

4:発光層

4 a:発光成分

40 5:電子注入輸送層

5":電子注入輸送層

5a:電子注入輸送成分

6:陰極

7:電源

